

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 57-063351
 (43)Date of publication of application : 16.04.1982

(51)Int.CI. C08L 57/06
 C08G 77/00
 // C09D 3/82

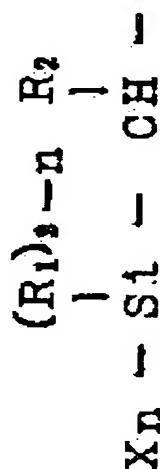
(21)Application number : 55-139086 (71)Applicant : KANEKA FUCHI CHEM IND CO LTD
 (22)Date of filing : 03.10.1980 (72)Inventor : KATO YASUSHI
 FURUKAWA HISAO

(54) COMPOSITION HAVING IMPROVED POT LIFE

(57)Abstract:

PURPOSE: A composition, consisting of a specific curing catalyst and a vinyl resin containing a hydrolyzable silyl group, and having improved pot life in an opened state, and useful for a coating material and coating agent.

CONSTITUTION: 100pts.wt. vinyl resin, generally expressed by the formula (Xn are hydrolyzable groups; R1 and R2 are 1W10C alkyl, aryl or aralkyl; n is a integer 1W3), and having silyl groups, the main chain consisting of a vinyl polymer substantially and at least one silicon group linked to a hydrolyzable group at the end or side chain thereof in one molecule is incorporated with 0.01W10pts.wt. mercaptide organotin compound having Sn-S bonds, a sulfide organotin compound having Sn=S bonds, an organic carboxylic acid (anhydride) or their mixture with a carboxylic acid organotin compound as a curing catalyst. The pot life is further improved by adding a hydrolyzable ester compound or alkyl alcohol.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

⑨ 日本国特許庁 (JP)

⑩ 特許出願公開

⑪ 公開特許公報 (A)

昭57-63351

⑫ Int. Cl.³
 C 08 L 57/06
 C 08 G 77/00
 // C 09 D 3/82

識別記号

厅内整理番号
 6911-4 J
 7019-4 J
 6779-4 J

⑬ 公開 昭和57年(1982)4月16日
 発明の数 1
 審査請求 未請求

(全 7 頁)

⑭ ポットライフの改善された組成物

⑮ 特許出願 昭55-139086

⑯ 出願日 昭55(1980)10月3日

⑰ 発明者 加藤康
 神戸市長田区片山町1丁目27-14

⑭ 発明者 古川久夫

神戸市垂水区塩屋町字滝ヶ平96
 -1三青荘

⑮ 出願人 鐘淵化学工業株式会社
 大阪市北区中之島3丁目2番4号

⑯ 代理人 弁理士 浅野真一

明細書

1. 発明の名称

ポットライフの改善された組成物

2. 特許請求の範囲

- 主鎖が、実質的にビニル系重合体からなり、末端あるいは側鎖に加水分解性基と結合した珪素基を1分子中に少くとも1個有するシリル基含有ビニル系樹脂100重量部と硬化触媒0.1~1.0重量部からなる組成物。
- 硬化触媒が、 $Se-S$ 結合を有するメルカプチド型有機錫化合物である特許請求の範囲第1項記載の組成物。
- 硬化触媒が、 $Sn-S$ 結合を有するスルフィド型有機錫化合物である特許請求の範囲第1項記載の組成物。
- 硬化触媒が、カルボン酸型有機錫化合物と $Sn-S$ 結合を有するメルカプチド型有機錫化合物との混合物であり、混合割合が1:0.1~2.0の範囲である特許請求の範囲第1項記載の組成物。

5. 硬化触媒が、カルボン酸型有機錫化合物と $Sn-S$ 結合を有するスルフィド型有機錫化合物との混合物であり、混合割合が1:0.1~2.0の範囲である特許請求の範囲第1項記載の組成物。

6. 硬化触媒が、カルボン酸型有機錫化合物と有機カルボン酸との混合物であり、混合割合が1:0.1~2.0の範囲である特許請求の範囲第1項記載の組成物。

7. 硬化触媒が、カルボン酸型有機錫化合物と有機カルボン酸無水物との混合物であり、混合割合が1:0.1~2.0の範囲である特許請求の範囲第1項記載の組成物。

8. 硬化触媒が、有機カルボン酸化合物である特許請求の範囲第1項記載の組成物。

9. 硬化触媒が、有機カルボン酸無水物である特許請求の範囲第1項記載の組成物。

3. 発明の詳細な説明

本発明は、末端あるいは側鎖に加水分解性シリル基を有するビニル系樹脂と硬化触媒とが

らなる組成物であり、特に開放状態でのボットライフの改善された組成物に関する。

本発明者らは、末端あるいは側鎖に加水分解性基を有するシリル基を含有するビニル系樹脂が、ビニル系樹脂の特徴である高光沢、耐候性、耐変色性等の優れた特徴だけでなく、加水分解性シリル基による無機物に対する密着性の向上、さらに水分特に大気中の水分による常温架橋で緻密な網状構造を形成し、耐溶剤性、耐水性、耐熱性、高い硬度、耐候性の優れた樹脂となることを見出しあり特許出願をおこなつている(特開昭54-56395)。

しかし、これら加水分解性基を有するシリル基含有ビニル系樹脂は、硬化触媒を用い硬化させることにより優れた硬化樹脂が得られるが、特に加水分解性基を3個有するシリル基を含むビニル系樹脂は硬化触媒を含む場合、開放状態でのボットライフが短いという欠点を有している。ボットライフを改善するための特許出願もなされており、例えば米国特許4,043,953には

ボットライフは、重合有機シラン、加水分解反応性シラン単量体と硬化触媒を密封下で保存し測定がおこなわれてはいるが、本発明に示される様を実用上重要な開放状態でのボットライフに関しては記載されていない。実際、上記米国特許に示される重合有機シランと加水分解反応性シラン単量体及び硬化触媒を用い、開放状態でのボットライフを測定した場合、満足な結果が得られるのは有機アミンを使用する場合のみであり、他の場合はボットライフは短かい。しかし有機アミンを用いて硬化樹脂を得た場合、有機アミンによる着色が問題となり他の触媒等の開発が望まれていた。

本発明者らは鋭意検討の結果、特殊を硬化触媒を用いることによりボットライフの改善がはかられることを見出しあり、本発明に至つた。

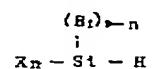
本発明の説明においては、1分子中に少くとも1個、好ましくは2個以上の加水分解性基を含有し、該シリル基の多くは、 $\begin{array}{c} (E_1)_2-n \quad R_2 \\ | \quad | \\ Xn-Si-R_1 \end{array}$

水酸基、カルボン酸基、アミド基等の活性水素基を含む量足量を塗いた $CH_2=CH$ 基を含む单量体とアクリレートアルコキシシラン、メタクリレートアルコキシシラン又はビニルアルコキシシランとを共重合させて得られる重合有機シランに、重合有機シランの重量を基準にして0.5~1.5重量%の式 $XnSi(OR_1)_n$ (ただし、Xは炭素数1~12の有機基、Rはメチル、エチル、2-メトキシメチル、2-エトキシエチル又は炭素数5以下のアルキル基、nは0.1又は2)の加水分解反応性シラン単量体を加えることにより硬化触媒存在下のボットライフの改善を行つてはいる。この場合、硬化触媒としては、プロトカルボン酸、リーブカルボン酸、等の有機酸; ナフテン酸銀、ジブチル銀ジラウレート、ステアリン酸銀、オクテン酸銀等の有機酸の金属塩; イソボロジアミン、メチレンジアミン、イミダゾール等の有機アミンを0.1~5重量%、好ましくは0.2~1重量%使用することが示されている。しかし実施例において

(ただし、Xは加水分解性基、n、Rは水素又は炭素数1~10までのアルキル基、アリール基又はアラルキル基を示し、nは1,2,3の整数である)で示される。

本発明のシリル基含有ビニル系樹脂の製造は、種々の方法で可能であるが以下に示す。④炭素一炭素二重結合を有するビニル系樹脂とヒドロシランによるヒドロシリル化反応、及び⑤ビニル系化合物と重合性二重結合を有するシリル化合物との共重合による方法が工業的に有効な方法である。以下に詳細説明する。

④ 本発明のシリル基含有ビニル系樹脂は、ヒドロシラン化合物を炭素一炭素二重結合を有するビニル系樹脂と遷移遷移金属の触媒下で反応させることにより容易に製造される。本発明において使用されるヒドロシラン化合物は次の一般式を有するものである。



(式中、Xは炭素数1~10までのアルキ

ル基、アリール基、アラルキル基より選ばれる1価の炭化水素基、Xはハロゲン、アルコキシ、アシロキシ、アミノキシ、フェノキシ、チオアルコキシ、アミノ基より選ばれる基、nは1から3までの整数である。)

この一般式に含まれるヒドロシラン化合物を具体的に例示すると、メチルジクロルシラン、トリクロルシラン、フェニルジクロルシランの如きハロゲン化シラン類；メチルジエトキシシラン、メチルジメトキシシラン、フェニルジメトキシシラン、トリメトキシシラン、トリニトキシシランの如きアルコキシシラン類；メチルジアセトキシシラン、フェニルジアセトキシシラン、トリアセトキシシランの如きアシロキシシラン類；メチルジアミノキシシラン、トリアミノキシシラン、メチルジアミノシラン、トリアミノシラン等の各種シラン類が挙げられる。

用いるヒドロシラン化合物の量は、ビニル系樹脂中に含まれる炭素一炭素二重結合に対

し、任意量の使用が可能であるが、4.5～2倍モルの使用が好ましい。これ以上のシリコン量の使用を妨げるものではないが未反応のヒドロシランとして回収されるだけである。

更に、本発明ではヒドロシラン化合物として安価な基礎原料で高反応性のハロゲン化シラン類が容易に使用できる。ハロゲン化シラン類を用いて得られるシリル基含有ビニル系樹脂は、空気中にはく露すると塩化水素を発生しながら常温で速やかに硬化するが、塩化水素による刺激臭の発生や、接触したり近接したりする物質を腐食する問題があり限定された用途にしか実用上使用できないので、更に競いてハロゲン官能基を他の加水分解性官能基に変換することが望ましい。

本発明の④法に使用されるビニル系樹脂としては、水酸基を含むビニル系化合物を除く以外、特に限定はなくアクリル酸メチル、メタクリル酸メチル、アクリル酸エチル、メタクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、メタク

リル酸ブチル、アクリル酸2-エチルヘキシル、メタクリル酸2-エチルヘキシル等のアクリル酸、メタクリル酸エステル；アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、フマル酸等のカルボン酸及び無水マレイン酸の様な酸無水物、グリシジルアクリレート、グリシジルメタクリレート、の様なエポキシ化合物、ジエチルアミノエチルアクリレート、ジエチルアミノエチルメタクリレート、アミノエチルビニルエーテルの様なアミノ化合物、アクリルアミド、メタクリルアミド、イタコン酸ジアミド、ローエオルアクリルアミド、クロトンアミド、フマル酸ジアミド、マレイン酸ジアミド、ローブトキシメチルアクリルアミド、ローブトキシメチルメタクリルアミド等のアミド化合物、アクリロニトリル、イミノールメタクリレート、ステレン、ニーメチルステレン、塩化ビニル、酢酸ビニル、ブロピオニ酸ビニル等から選ばれる共重合体を主成分とする樹脂が適当である。これらビニル化合物

の単独あるいは共重合体の製造時や、一部アクリル酸アリルやメタクリル酸アリル、ジアリルフタレート等をラジカル共重合させることにより、ビニル系樹脂中にヒドロシリル化反応の為の炭素一炭素二重結合の分子末端又は側鎖への導入が可能である。このために必要なモノマーの使用量は、目的とする樹脂中のシリル基の数に応じて任意に定めることができる。更に、エーデシルメルカプタジやセードデシルメルカプタンの如き連鎖移動剤を加えることにより分子量を調節することができる。これらビニル系化合物の重合の際は溶剤を用意しても、しなくてよいが、使用する場合はエーテル類、炭化水素類、酢酸エチル類の如き非反応性の溶剤の使用が好ましい。

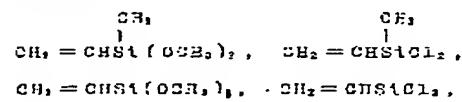
本発明においては、ヒドロシラン化合物を炭素一炭素二重結合に反応させる段階で遷移金属錯体の触媒を必要とする。遷移金属錯体触媒としては、ヒドロジウム・コバルト・

パラジウムおよびニッケルから選ばれた遷移金属錯体化合物が有効に使用される。このヒドロシリル化反応は50～650°Cの一定の温度で達成され、反応時間は1～10時間程度である。(8)。

⑤ 本発明の他の方法は、式 $n_2 = s_1 - x_1$

(式中、R₁は炭素数1～10までのアルキル基、アリール基、フタルキル基より選ばれる1個の炭化水素基、R₂は重合性二重結合を有する有機残基、又はハロゲン、アルコキシ、アシロキシ、アミノキシ、フニノキシ、チオアルコキシ、アミノ基より選ばれる基、エは1,2,3の整数である。)で示されるシラン化合物と各種ビニル系化合物をラジカル重合することにより製造される。

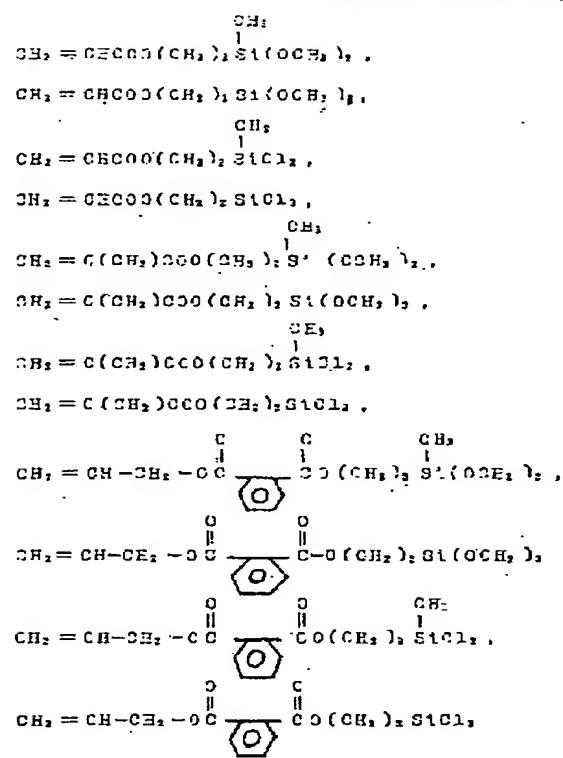
本発明に使用されるシラン化合物としては、
例えば、



これらのシラン化合物は種々の方法により合成されるが、例えばアセチレン、アリルアクリレート、アリルメタクリレート、ジアリルフタレートとメチルジメトキシシラン、メチルジクロルシランとを遷移金属の触媒下で反応させることにより製造することができる。

本発明に使用されるビニル系化合物としては、前記④法でビニル系樹脂合成時に用いられる化合物を用いすることが可能であるが、④法に記載された以外に2-ヒドロキシエチルアクリレート、2-ヒドロキシエチルメタクリレート、2-ヒドロキシプロピルアクリレート、2-ヒドロキシプロピルメタクリレート、2-ヒドロキシビニルエーテル等の水溶基を含むビニル系化合物も可能である。

これらビニル系化合物とシラン化合物の共重合体の合成は、通常の溶液重合法でおこなわれる。ビニル系化合物、シラン化合物、ラジカル開始剤、又、適当な分子量のシリル基



等が挙げられる。

含有共重合体を得るために必要に応じて、 α -ドデシルメルカプタン、ヒードデシルメルカプタンの如き連鎖移動剤を加え50~150℃で反応せしる。溶剤は、使用しても、しなくてよいが、使后する場合はエーテル類、炭化水素類、酢酸エステル類の如き非反応性の溶剤の使用が好ましい。

この様にして得られたシリル基含有ビニル系樹脂は、公知の方法で加水分解性基を互いに変換することが可能である。

この様にして主鎖が、英質的にビニル系重合体からなり、且つ末端あるいは側鎖に加水分解性基と結合した珪素基を1分子中に少くとも1個以上有するシリル基を有ビニル系剤脂が得られる。

本発明の特殊な硬化触媒としては以下に示すものが使用される。

① $\text{Sn}-\text{S}$ 又は $\text{Sn}=\text{S}$ 結合を有するメルカブチド型又はスルフィド型有機錫化合物を使用する。即ち $(\text{C}_6\text{H}_5)_2\text{Sn}(\text{SCH}_3, \text{SO}_2)$ 。

特開昭57-63351(5)

に示したものが使用される。

以上の特殊な硬化触媒を用いる場合、シリル基含有ビニル系樹脂は特に限定ではなく、また触媒はシリル基含有ビニル系樹脂 1.0 重量部に対し、0.01～1.0 重量部使用される。

以上本発明の方法により、開放状態でのポリトライフルオルトギ酸トリメチル、オルトギ酸トリエチル等のオルトギ酸トリフルキル、メチルトリエトキシシラン、メチルトリアセトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、オルト珪酸テトラメチル、オルト珪酸テトラエチル等の加水分解性有機シリコン化合物等の加水分解性のエster化合物、及び又はメチルアルコール、ブチルアルコール、アミルアルコール、セコソルブ等のアルキルアルコールを含むことにより、さらに改善がはかられる。

本発明のシリル基含有ビニル系樹脂組成物は、常温又は低温硬化が可能であることから熱塑又

Sc(OCOC₂H₅)₃等を使用することができる。カルボン酸型とメルカブチド型、スルフオキド基有機銅化合物の混合割合は1:0.1～2.0、好ましくは1:0.1～1.0の範囲が良い。

カルボン酸型有機錫化合物に、有機カルボン酸又は酸無水物を混合して使用する。有機カルボン酸及び酸無水物としては、安息香酸、フタル酸、コハク酸、アジピン酸、^{塩酸、無水酢酸、無水マレイン酸、}ビロメリクト酸、無水フタル酸、無水コハク酸、二無水ビロメリクト酸等を使用することができる。カルボン酸型有機錫化合物としては、④に示したものが用いられるが $Sn(OOCCH_3)_2$ の様な第1錫化合物は沈殿を生じ好ましくない。有機カルボン酸又は酸無水物化合物との混合割合は 1 : 0.1 ~ 2.0、好ましくは 1 : 0.1 ~ 1.0 の範囲がよい。

④ 有機カルボン酸又は酸無水物を使用する。
有機カルボン酸又は酸無水物としては、④

はコーティング剤として有効である。実際、実施例で示す様に常温で速かに硬化し表面光沢の優れた塗膜を与える。エチルシリケート等本発明のシリル基含有ビニル系樹脂と共に組合可能な化合物を添加することにより表面硬度等の物性向上を計ることも可能である。又、現在塗料、コーティング剤として用いられている種々の樹脂とブレンドすることが可能であり、例えばラッカーベース塗料、アクリルラッカーベース塗料、熱硬化アクリル塗料、アルキド樹脂、メラミン樹脂、エポキシ樹脂等と適切な割合で混合し使用することができ、現在用いられているこれら塗料、コーティング剤の密着性、耐候性等の物性を向上させることができる。

本発明のシリル基含有ビニル系樹脂組成物は、種々の充填剤、燃料等を混入することが可能である。充填剤、燃料としては、各種シリカ類、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、酸化チタン、酸化鉄、ガラス繊維等種々のものが使用可能である。このようにして前記の用途だけでな

く、航空機、建造物、自動車、ガラス等の被覆組成物、密封組成物及び各種無機物の表面処理剤としても有用である。

次に本発明を具体的に実施例をもつて説明する。

実施例 1

90℃に加熱した70gのキシレン溶液中に、ステレン30g、メタクリル酸アリル16g、メタクリル酸メチル20g、メタクリル酸エーピテル19g、アクリル酸オキル14g、無水マレイン酸4g、カーボンジカルボン酸2gにアゾビスイソブチロニトリル2gを溶かした溶液を滴下し、10時間反応させ、分子量8000のアリル型不飽和基含有のビニル系重合体が得られた。このものの赤外吸収スペクトルには 1648cm^{-1} の炭素-炭素第三重結合による吸収及び 1780cm^{-1} の酸無水物の吸収が観測された。得られた重合体溶液から減圧下40gの溶剤を除去する。

得られたアリル型不飽和基含有のビニル共重

合体溶液16gにトリメトキシシラン1.5g、塩化白金酸0.005gをインプロパンノールに溶かした溶液を加え密封下90℃で6時間反応した。このものの赤外吸収スペクトルには 1648cm^{-1} の吸収は消えており、シリル基含有ビニル系重合体が得られた。

合体溶液16gにトリメトキシシラン1.5g、塩化白金酸0.005gをインプロパンノールに溶かした溶液を加え密封下90℃で6時間反応した。このものの赤外吸収スペクトルには 1648cm^{-1} の吸収は消えており、シリル基含有ビニル系重合体が得られた。

実施例 2

90℃に加熱した70gのキシレン中に、ステレン30g、アーメタクリロキシプロピルトリメトキシシラン2.2g、メタクリル酸メチル2.2g、メタクリル酸ローブナル1.3g、アクリル酸ブチル1.6gにアゾビスイソブチロニトリル2gを溶かした溶液を滴下し、10時間反応させ分子量16000のシリル基含有ビニル系樹脂を得た。

実施例 3

90℃に加熱した70gのキシレン中に、ステレン32g、アーメタクリロキシプロピルトリメトキシシラン2.2g、メタクリル酸メチル2.2g、メタクリル酸ローブナル1.5g、アクリ

リル酸ブチル1.8g、カーボンジカルボン酸2gにアゾビスイソブチロニトリル2gを溶かした溶液を滴下し、10時間反応させ分子量9000のシリル基含有ビニル系樹脂を得た。

実施例 4

70℃に加熱した70gのキシレン中に、ステレン30g、アーメタクリロキシプロピルトリメトキシシラン2.2g、メタクリル酸メチル5.2g、メタクリル酸ローブナル1.3g、アクリル酸ブチル1.8g、アクリルアミド3g、ループタノール10g、カーボンジカルボン酸4gにアゾビスイソブチロニトリル2gを溶かした溶液を滴下し、10時間反応させ分子量6000のシリル基含有ビニル系樹脂を得た。

実施例 5

90℃に加熱した70gのキシレン中に、ステレン30g、アーメタクリロキシプロピルトリメトキシシラン2.2g、メタクリル酸メチル2.2g、メタクリル酸ローブナル1.3g、アクリル酸ブチル1.2g、2-ヒドロキシエチルメタクリレート4gの代りに、カーボンジカルボン酸2g、ループタノール10gを使用し同様に反応を重ね分子量5000のシリル基含有ビニル系樹脂を得た。

実施例5のカーボンジカルボン酸4g、2-ヒドロキシエチルメタクリレート4gの代りに、カーボンジカルボン酸2g、アクリルアミド4g、無水マレイン酸2g、ループタノール10gを使用し同様に反応を重ね分子量5000のシリル基含有ビニル系樹脂を得た。

以上の実施例1～5で得られた樹脂溶液に、表1に示す添加剤及び硬化触媒を加え、塗装粘度(フォードカッピングテストで15秒)にキシレンで希釈し、開放状態での皮張り又はゲル化までのポットライフを測定した。結果を表1に示す。

以上の実施例1～5で得られた樹脂溶液に、表1に示す添加剤及び硬化触媒を加え、塗装粘度(フォードカッピングテストで15秒)にキシレンで希釈し、開放状態での皮張り又はゲル化までのポットライフを測定した。結果を表1に示す。

表 4

硬化 種類	触媒 種類	添加剤 種類	開放状態での ポットライフ	
			樹脂100 部に対する 配合部数	樹脂100 部に対する 配合部数
実施例1 Stann JF-9B	5	メタノール *4 CSE	10 10	10時間以上
実施例2 Stann JF-9B	5	メタノール	10	*
実施例3 Stann JF-9B	16 2.4	OSE	10	*
OT	1	CSE	10	3時間で皮張り
実施例4 Stann JF-9B	5	なし		10時間以上
実施例5 DTL	5	メタノール OSE	10 10	3時間で皮張り
DTL フタル酸	5 1	メタノール CSE	10 10	10時間以上
実施例6 Stann JF-9B	5	メタノール *5 CPM DSE	10 1 10	*

(注)

*1 Stann JF-9B : 三共有機触媒ビ用安定剤

主成分化学式 : (o-Butyl), S-(SCH₂COCR)₂R は C₄ ~ C₁₁

*2 OT : オクタル酸

*3 DTL : デブチル錫ジラウレート

*4 OSE : オルト珪酸テトラエチル

*5 OPM : オルトキ酸メリメタル

以上の結果から、本発明の組成物は開放状態でのポットライフが大巾に改善されていることがわかる。

自第手続補正書

昭和56年1月12日

特許庁長官 島田春樹 教造

1. 事件の表示

昭和55年特許第139086号

2. 明細書の名称 ポットライフ改善された組成物

3. 補正をする者

事件との因縁 特許出願人

花井 勝 大阪市北区中之島三丁目2番4号

氏名(名称) 鮎田化成工業株式会社

(090)

代表取締役 鮎田 勝

4. 代理人

花井 勝 大阪市西区立町1丁目13番2号
新星ビル5階

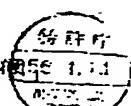
氏名 05983弁理士 浅野真一

5. 補正の日付

6. 補正により増加する発明の数

7. 補正の対象

明細書、発明の詳細を説明の第55-1-1



8. 補正の内容

明細書上記、下記2行目、「分離性基」と「同一」と結合した「シリカ基」を加入了。

以上

明細書

10頁、9行目、"a-トクシルメルカバラン"を
"カーボンシルメルカバラン"に訂正。す。13頁、5行目、"シラン"と"ヒドロシラン"、"トキシドシラン"
"トリクロルシラン"を加入了。

13頁、下から6行目、

"エーテル"と"辛"の間に
"N-メチツールアクリルアミド"、200-22
5-900(東亜合成(株)製)を加入了。